

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 7月29日

出願番号

Application Number:

特願2002-219205

[ST.10/C]:

[JP2002-219205]

出願人

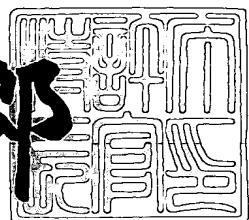
Applicant(s):

カシオ計算機株式会社

2003年 5月30日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田 信一郎



出証番号 出証特2003-3037691

【書類名】 特許願

【整理番号】 02-0731-00

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B01J 8/00

【発明者】

【住所又は居所】 東京都青梅市今井3丁目10番地6

カシオ計算機株式会社青梅事業所内

【氏名】 河村 義裕

【発明者】

【住所又は居所】 東京都青梅市今井3丁目10番地6

カシオ計算機株式会社青梅事業所内

【氏名】 小椋 直嗣

【特許出願人】

【識別番号】 000001443

【氏名又は名称】 カシオ計算機株式会社

【代理人】

【識別番号】 100073221

【弁理士】

【氏名又は名称】 花輪 義男

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 057277

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0015435

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 小型化学反応装置およびその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 小型の基板と、該基板の一面に形成された微小な流路と、該流路内に設けられた触媒層と、前記基板の一面に接合された対向基板とを備えた小型化学反応装置において、前記対向基板の前記基板との対向面において前記触媒層に対応する部分に触媒層逃げ用の凹部が形成されていることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項2】 請求項1に記載の発明において、前記凹部の幅は前記流路の幅よりもやや大きくなっていることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項3】 請求項1に記載の発明において、前記基板はシリコン基板であり、前記対向基板はガラス板であり、前記シリコン基板と前記ガラス板とは陽極接合されていることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項4】 請求項1に記載の発明において、前記触媒層は前記基板の一面より突出する突出部を有し、前記対向基板の前記凹部は前記突出部に接触しない程度の空間を構成していることを特徴とする小型化学反応装置。

【請求項5】 小型の基板の一面に微小な流路を形成し、前記基板の一面にドライフィルムからなるフォトトレジストを貼り付け、前記フォトトレジストの前記流路に対応する部分に開口部を形成し、前記流路内および前記開口部内を含む前記フォトトレジストの表面に触媒層を形成し、前記フォトトレジストをその表面に形成された不要な部分の前記触媒層と共に引き剥がして除去し、前記基板の一面に該一面との対向面において前記流路内に形成された前記触媒層に対応する部分に触媒層逃げ用の凹部が形成された対向基板を接合することを特徴とする小型化学反応装置の製造方法。

【請求項6】 小型の基板の一面にドライフィルムからなるフォトトレジストを貼り付け、前記フォトトレジストの前記基板の一面の微小流路形成領域に対応する部分に開口部を形成し、該開口部を有する前記フォトトレジストをマスクとして前記基板の一面に微小な流路を形成し、前記流路内および前記開口部内を含む前記フォトトレジストの表面に触媒層を形成し、前記フォトトレジストをその表面に形

成された不要な部分の前記触媒層と共に引き剥がして除去し、前記基板の一面に該一面との対向面において前記流路内に形成された前記触媒層に対応する部分に触媒層逃げ用の凹部が形成された対向基板を接合することを特徴とする小型化学反応装置の製造方法。

【請求項7】 請求項5または6に記載の発明において、前記凹部の幅は前記流路の幅よりもやや大きくなっていることを特徴とする小型化学反応装置の製造方法。

【請求項8】 請求項5または6に記載の発明において、前記基板はシリコン基板であり、前記対向基板はガラス板であり、前記シリコン基板と前記ガラス板とを陽極接合することを特徴とする小型化学反応装置の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

この発明は小型化学反応装置およびその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

化学反応の技術分野では、流体化された混合物質を流路内に設けられた触媒による化学反応（触媒反応）により、所望の流体物質を生成する化学反応装置が知られている。従来のこのような化学反応装置には、半導体集積回路などの半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、シリコン基板上に幅がミクロンオーダーあるいはミリメートルオーダーの流路を形成したものがある。

【0003】

図13は従来のこのような小型化学反応装置の一例の透過平面図を示し、図14はそのB-B線に沿う断面図を示したものである。この小型化学反応装置は小型のシリコン基板1を備えている。シリコン基板1の一面には、半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、蛇行した微小な流路2が形成されている。流路2の内壁面には触媒層3が設けられている。

【0004】

シリコン基板1の一面には蓋となるガラス板4が接合されている。ガラス板4

の流路2の両端部に対応する所定の2箇所には、ガラス板4の厚さ方向に貫通する流入口5および流出口6が形成されている。シリコン基板1の他面には蛇行した薄膜ヒータ7が設けられている。薄膜ヒータ7は、この小型化学反応装置における化学反応（触媒反応）が所定の熱条件による吸熱反応を伴うとき、化学反応時に流路2内の触媒層3に所定の熱エネルギーを供給するためのものである。

【0005】

次に、この小型化学反応装置のシリコン基板1の流路2の部分の製造方法の一例について説明する。まず、図15に示すように、小型のシリコン基板1の一面に、半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、蛇行した微小な流路2を形成する。次に、流路2内を含むシリコン基板1の一面に塗布されたフォトレジストをパターニングすることにより、流路2に対応する部分に開口部12を有するフォトレジスト11を形成する。

【0006】

次に、図16に示すように、流路2内および開口部12内を含むフォトレジスト11の表面に触媒層3を形成する。次に、フォトレジスト11をその表面に形成された触媒層3の不要な部分と共に除去すると、図17に示すように、流路2の内壁面にのみ触媒層3が残存される。この場合、フォトレジスト11の除去は、剥離液を用いる方法、あるいは酸素プラズマアッシングによる方法がある。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

ところで、上記従来の製造方法では、剥離液を用いて、フォトレジスト11をその表面に形成された触媒層3の不要な部分と共に除去する場合には、流路2の内壁面に残存される触媒層3が剥離液と接触してダメージを受けることがあり、またフォトレジスト11の表面に形成された触媒層3が邪魔となり、剥離液がフォトレジスト11まで十分に到達せず、フォトレジスト11を良好に除去することができない場合があるという問題があった。また、酸素プラズマアッシングにより、フォトレジスト11をその表面に形成された触媒層3の不要な部分と共に除去する場合には、フォトレジスト11の表面に形成された触媒層3が蔭となり、プラズマ種がフォトレジスト11まで十分に到達せず、フォトレジスト11を

良好に除去することができない場合があるという問題があった。仮にフォトレジスト11を除去できたとしてもフォトレジスト11の側方に接していた触媒層3の突出部3aが残存してしまい、シリコン基板1とガラス板4とを接合する際に突出部3aが障害となり、無理に噛み合わせようすると突出部3aが潰れてシリコン基板1のガラス板4との間の界面部1aに入り隙間が生じてしまい、流路2として機能することが困難になってしまふといった問題が生じていた。また、このような問題を解消するためにメタルマスクを用いた印刷を試みると、小型化学反応装置で求められるラインアンドスペースの高精細なピッチの流路2内に触媒溶液を塗布することが困難なため、化学反応装置の小型化の障害となっていた。

そこで、この発明は、高精細なピッチの流路内に触媒層を形成するためのフォトレジストを、流路内に残存される触媒層にダメージを与えることなく、良好に除去することができる小型化学反応装置およびその製造方法を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】

請求項1に記載の発明に係る小型化学反応装置は、小型の基板と、該基板の一面に形成された微小な流路と、該流路内に設けられた触媒層と、前記基板の一面に接合された対向基板とを備えた小型化学反応装置において、前記対向基板の前記基板との対向面において前記触媒層に対応する部分に触媒層逃げ用の凹部が形成されていることを特徴とするものである。

請求項1に記載の発明によれば、触媒層の一部が製造工程時に基板の一面より外にはみ出されても、基板と対向基板との接合面に触媒層の一部若しくはその破片が入り込まないために基板と対向基板とを良好に接合することができる。

請求項2に記載の発明に係る小型化学反応装置は、請求項1に記載の発明において、前記凹部の幅は前記流路の幅よりもやや大きくなっていることを特徴とするものである。

請求項3に記載の発明に係る小型化学反応装置は、請求項1に記載の発明において、前記基板はシリコン基板であり、前記対向基板はガラス板であり、前記シ

リコン基板と前記ガラス板とは陽極接合されていることを特徴とするものである。

請求項4に記載の発明に係る小型化学反応装置は、前記触媒層は前記基板の一面より突出する突出部を有し、前記対向基板の前記凹部は前記突出部に接触しない程度の空間を構成していることを特徴とするものである。

請求項5に記載の発明に係る小型反応装置の製造方法は、小型の基板の一面に微小な流路を形成し、前記基板の一面にドライフィルムからなるフォトレジストを貼り付け、前記フォトレジストの前記流路に対応する部分に開口部を形成し、前記流路内および前記開口部内を含む前記フォトレジストの表面に触媒層を形成し、前記フォトレジストをその表面に形成された不要な部分の前記触媒層と共に引き剥がして除去し、前記基板の一面に該一面との対向面において前記流路内に形成された前記触媒層に対応する部分に触媒層逃げ用の凹部が形成された対向基板を接合することを特徴とするものである。

請求項6に記載の発明に係る小型反応装置の製造方法は、小型の基板の一面にドライフィルムからなるフォトレジストを貼り付け、前記フォトレジストの前記基板の一面の微小流路形成領域に対応する部分に開口部を形成し、該開口部を有する前記フォトレジストをマスクとして前記基板の一面に微小な流路を形成し、前記流路内および前記開口部内を含む前記フォトレジストの表面に触媒層を形成し、前記フォトレジストをその表面に形成された不要な部分の前記触媒層と共に引き剥がして除去し、前記基板の一面に該一面との対向面において前記流路内に形成された前記触媒層に対応する部分に触媒層逃げ用の凹部が形成された対向基板を接合することを特徴とするものである。

請求項7に記載の発明に係る小型反応装置の製造方法は、請求項4または5に記載の発明において、前記凹部の幅は前記流路の幅よりもやや大きくなっていることを特徴とするものである。

請求項8に記載の発明に係る小型反応装置の製造方法は、請求項4または5に記載の発明において、前記基板はシリコン基板であり、前記対向基板はガラス板であり、前記シリコン基板と前記ガラス板とを陽極接合することを特徴とするものである。

そして、この発明によれば、フォトレジストとしてドライフィルムからなるものを用い、フォトレジストをその表面に形成された不要な部分の触媒層と共に引き剥がして除去しているので、ドライフィルムからなるフォトレジストを、流路内に残存される触媒層にダメージを与えることなく、良好に除去することができる。この場合、対向基板との対向面において触媒層に対応する部分に触媒層逃げ用の凹部を形成しているのは、フォトレジストの開口部の内壁面に形成された触媒層がフォトレジストと共に除去されずに、基板の一面上に食み出して残存されても、基板の一面に対向基板を確実に接合するためである。

【0009】

【発明の実施の形態】

図1はこの発明の一実施形態としての小型化学反応装置の透過平面図を示し、図2はそのA-A線に沿う断面図を示したものである。この小型化学反応装置は結晶性シリコン（単結晶シリコンや多結晶シリコン）やアルミ等からなる小型の基板21を備えている。基板21の寸法は、一例として、長さ25mm程度、幅17mm程度、厚さ0.6~1mm程度である。基板21の一面21aには、半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、蛇行した微小な流路22が形成されている。流路22の寸法は、一例として、幅0.2~0.8mm程度、深さ0.2~0.6mm程度であり、全長は30~1000mm程度である。

【0010】

流路22の内壁面には触媒層23が設けられている。基板21の一面21aには蓋となる厚さ0.7mm程度の対向基板24が接合されている。対向基板24の流路22の両端部に対応する所定の2箇所には、対向基板24の厚さ方向に貫通する円形状の流入口25および流出口26が形成されている。対向基板24の基板21との対向面において触媒層23（流路22）に対応する部分には触媒層逃げ用の凹部27が形成されている。この場合、凹部27の幅と流入口25および流出口26の直径は流路22の幅よりもやや大きくなっている。その理由については後で説明する。

【0011】

基板21の他面にはTaSiO_xやTaSiO_xN（xは正の数値）などの抵

抗体薄膜からなる蛇行した薄膜ヒータ28が形成されている。薄膜ヒータ28は、この小型化学反応装置における化学反応（触媒反応）が所定の熱条件による吸熱反応を伴うとき、化学反応時に流路22内の触媒層23に所定の熱エネルギーを供給するためのものである。この場合、蛇行した薄膜ヒータ28は、蛇行した流路22と平面的に一致させているが、一致しないようにしてもよい。また、薄膜ヒータ28は流路22全面を覆うようなべた状としてもよい。

【0012】

基板21の他面には、一面の中央部に凹部30が形成された厚さ0.7mm程度のガラスからなる基板29の周辺部が接合されている。基板29は、薄膜ヒータ28を保護するほかに、薄膜ヒータ28の熱拡散を防止し、熱効率を良くするためのものである。また、凹部30内は、断熱性能を高めるため、ほぼ真空としてもよい。

【0013】

次に、この小型化学反応装置の製造方法の第1の例について説明する。まず、図3に示すように、小型の基板21の一面21aに、半導体製造技術で蓄積された微細加工技術を用いて、蛇行した微小な流路22を形成する。この場合、流路22の形成は、ウェットエッチングやドライエッチングによって行ってもよいが、サンドブラスト法によって行うことが好ましい。すなわち、サンドブラスト法は、加工レートが速く、また装置が比較的安価であるからである。

【0014】

次に、基板21の一面21aにドライフィルムからなるフォトレジスト31を貼り付ける。この状態では、フォトレジスト31がドライフィルムであるため、流路22内は空洞となる。次に、図4に示すように、フォトレジスト31をパターニングして、フォトレジスト31の流路22に対応する部分に開口部32を形成する。この場合、開口部32の幅は流路22の幅とほぼ同じである。

【0015】

次に、図5に示すように、流路22の内壁面および開口部32の内壁面を含むフォトレジスト31の表面に、触媒粒子を溶媒中に分散させてなる触媒溶液を塗布することにより、あるいはスパッタリング法などの物理的成膜法により、触媒

層23を形成する。次に、フォトレジスト31をその表面に形成された不要な部分の触媒層23と共に機械的力により引き剥がして除去すると、図6に示すように、流路22の内壁面にのみ触媒層23が残存される。

【0016】

このように、フォトレジスト31としてドライフィルムからなるものを用い、フォトレジスト31をその表面に形成された不要な部分の触媒層23と共に機械的力により引き剥がして除去しているので、ドライフィルムからなるフォトレジスト31を、流路22内に残存される触媒層23にダメージを与えることなく、良好に除去することができる。

【0017】

ところで、フォトレジスト31を機械的力により引き剥がしたとき、基板21の一面21a上にレジスト残渣（スカム）がわずかに残存した場合には、当該レジスト残渣を酸素プラズマアッシングなどのディスカム処理により除去する。これは、基板21の一面21aへの対向基板24の後述する陽極接合を確実とするためである。

【0018】

また、フォトレジスト31を機械的力により引き剥がしたとき、図5に示すように、フォトレジスト31の開口部32の内壁面に形成された触媒層23の突出部23aがフォトレジスト31と共に除去されずに、例えば図7に示すように、基板21の一面21a上に食み出して残存されることがある。このような場合には、基板21の一面21a上に食み出して残存された触媒層23の突出部23aを研磨などにより除去すればよいが、この食み出し部のみを研磨などにより除去することは極めて困難である。

【0019】

すなわち、基板21の一面21aへの対向基板24の後述する陽極接合を確実とするためには、基板21の一面21aを平滑面としておく必要がある。したがって、基板21の一面21aは予め研磨されて平滑面とされている。このため、基板21の一面21a上に食み出して残存された触媒層23の突出部23aのみを研磨などにより完全に除去することは極めて困難である。

【0020】

一方、基板21の一面21aをやや再研磨することにより、基板21の一面21a上に食み出して残存された触媒層23を除去する方法もある。しかしながら、それでは、基板21の一面21aを予め研磨して平滑面としておく意味が無くなってしまう。また、再研磨のため、製造時間が長くなってしまう。そこで、この発明では、基板21の一面21a上に食み出して残存された触媒層23をそのまま残存させる。

【0021】

また、図3に示すように、流路22が形成された基板21の一面21aにドライフィルからなるフォトレジスト31を貼り付け、次いで図4に示すように、フォトレジスト31をパターニングして、フォトレジスト31の流路22に対応する部分に開口部32を形成しているので、流路22に対する開口部32の位置がずれる場合がある。このような場合には、開口部32の幅が流路22の幅とほぼ同じであると、流路22の近傍における基板21の一面21a上に触媒層23の突出部23aが残存されることがある。このような場合も、流路22の近傍における基板21の一面21a上に残存された触媒層23の突出部23aをそのまま残存させる。

【0022】

次に、図1および図2に示すように、基板21の他面にTaSiO_xやTaSiO_xN（xは正の数値）などの抵抗体薄膜からなる蛇行した薄膜ヒータ28を形成する。次に、対向基板24に、サンドブラスト法により、流入口25および流出口26を形成し、且つ、座ぐり加工により、凹部27を形成したものを用意する。また、基板29に、座ぐり加工により、凹部30を形成したものを用意する。

【0023】

次に、基板21の一面21aに対向基板24を重ね合わせ、陽極接合処理を行うことにより、基板21の一面21aに対向基板24を接合する。また、基板21の他面に基板29を重ね合わせ、陽極接合処理を行うことにより、基板21の他面に基板29を接合する。

【0024】

ところで、対向基板24の凹部27の幅と流入口25および流出口26の直径は流路22の幅よりもやや大きくなっている。また凹部27の凹みは、基板21の一面21aから突出した突出部23aの高さの最大値、つまりフォトレジスト31の厚さ及び開口部32の厚さの和より高いように設定されている。このため、図7に示すように、基板21の一面21a上に食み出して残存された触媒層23の突出部23aがそのまま残存されても、基板21の一面21aに対向基板24を陽極接合した状態では、図8に示すように、基板21の一面21a上に食み出して残存された触媒層23の突出部23aは凹部27内や流入口25内などに配置される。流路22の近傍における基板21の一面21a上に触媒層23の突出部23aが残存されている場合には、これも凹部27内や流入口25内などに配置されるようとする。したがって、触媒層23の突出部23aが対向基板24に接触する事がないので突出部23aの破片が製造工程中に基板21における対向基板24との接合面である一面21a上に残ることがないので基板21と対向基板24が隙間無く良好に接合することができる。

【0025】

したがって、基板21の一面21a上に食み出して残存された触媒層23などが陽極接合処理の邪魔になることはない。しかも、この場合、流路22から突出しないように触媒層23を設ける場合と比較して、基板21の一面21a上に食み出して残存された触媒層23の突出部23a分だけ触媒の表面積を多くすることができる。この結果、触媒の表面積に大きく依存する流路22内の反応速度を比較的速くすることができる。

【0026】

ここで、代表として、基板21としてシリコンを採用した際の基板21の一面21aに対向基板24を接合する陽極接合処理について説明する。基板21の一面21aに対向基板24を重ね合わせ、基板21側を陽極とし、対向基板24側を陰極とする。そして、基板21および対向基板24を400～600℃程度に加熱した状態で、両極間に1kV程度の直流電圧を印加する。

【0027】

すると、対向基板24内の不純物である陽イオンが基板21から離れる方向に移動し、対向基板24の基板21側の界面に負電荷の酸素の濃度の高い層が現れる。すると、基板21の対向基板24側の界面のシリコン原子と対向基板24の基板21側の界面の酸素イオンとが結合し、強固な接合界面が得られる。

【0028】

この場合、基板21および対向基板24を400～600℃程度に加熱し、両極間に1kV程度の直流電圧を印加するのは、対向基板24内の不純物である陽イオンが基板21から離れる方向に移動する速度を高くして基板21と対向基板24との間の結合を容易にするためである。

【0029】

次に、図1および図2に示す小型化学反応装置の製造方法の第2の例について説明する。まず、図9に示すように、小型の基板21の一面21aにドライフィルムからなるフォトレジスト31を貼り付ける。次に、図10に示すように、フォトレジスト31をパターニングして、フォトレジスト31の流路形成領域に対応する部分に開口部32を形成する。次に、フォトレジスト31をマスクとしたエッチングにより、図4に示すように、基板21の一面21aに蛇行した微小な流路22を形成する。フォトレジスト31をマスクとして触媒層23を形成する工程以降は上記第1の例の場合と同じであるので、省略する。

【0030】

ところで、上記第1の例の場合には、フォトレジスト31の開口部32のパターニングと流路22のパターニングをそれぞれ別工程で行っているので、開口部32の流路22に対する位置ずれが発生することがあり、またフォトレジスト31とは別に、流路22を形成するためのフォトレジストパターンを形成しなければならず、工程数が多い。

【0031】

これに対し、上記第2の例の場合には、図10に示すように、フォトレジスト31をパターニングして、フォトレジスト31の流路形成領域に対応する部分に開口部32を形成し、次いでフォトレジスト31をマスクとして図4に示すように、基板21の一面21aをエッチングして流路22を形成しているので、結果

的には、流路22に対する開口部32の位置を一致させることができる。また、フォトレジスト31をマスクとして流路22を形成しているので、工程数を少なくすることができ、アライメントの誤差のためのクリアランスが必要ないので流路22間を狭くでき、基板21を小型化することができる。

【0032】

次に、この発明に係る小型反応装置を燃料改質型の燃料電池を用いた燃料電池システムに適用した場合について説明する。図11は燃料電池システム41の一例の要部のブロック図を示したものである。この燃料電池システム41は、燃料部42、燃料気化部43、改質部44、一酸化炭素除去部45、発電部46、充電部47などを備えている。

【0033】

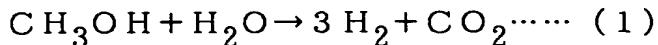
燃料部42は、発電用燃料（例えばメタノール水溶液）が封入された燃料パックなどからなり、発電用燃料を燃料気化部43に供給する。

【0034】

燃料気化部43は、図1および図2に示すような構造となっている。ただし、この場合、流路22内には触媒層23は設けられていない。そして、燃料気化部43は、燃料部42からの発電用燃料が流入口25を介して流路22内に供給されると、流路22内において、薄膜ヒータ28の加熱（120°C程度）により、発電用燃料を気化させ、この気化された発電用燃料ガス（例えば発電用燃料がメタノール水溶液の場合、 $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$ ）を出口26から流出させる。

【0035】

燃料気化部43で気化された発電用燃料ガス（ $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$ ）は改質部44に供給される。この場合、改質部44も、図1および図2に示すような構造となっている。ただし、この場合、触媒層23は、例えば、Cu、ZnO、Al₂O₃などからなる改質触媒を含むものからなっている。そして、改質部44は、燃料気化部43からの発電用燃料ガス（ $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$ ）が流入口25を介して流路22内に供給されると、流路22内において、薄膜ヒータ28の加熱（280°C程度）により、次の式（1）に示すような吸熱反応を引き起こし、水素と副生成物の二酸化炭素とを生成する。



【0036】

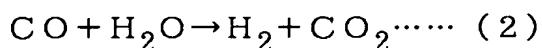
上記式(1)の左辺における水(H_2O)は、反応の初期では、燃料部42の燃料に含まれているものでよいが、後述する発電部46の発電に伴い生成される水を回収して改質部44に供給するようにしてもよい。また、発電部46の発電中の上記式(1)の左辺における水(H_2O)の供給源は、発電部46のみでもよく、発電部46および燃料部42でも、また燃料部42のみでもよい。なお、このとき微量ではあるが、一酸化炭素が改質部44内で生成されることがある。

【0037】

そして、上記式(1)の右辺の生成物(水素、二酸化炭素)および微量の一酸化炭素は改質部44の流出口26から流出される。改質部44の流出口26から流出された生成物のうち、気化状態の水素および一酸化炭素は一酸化炭素除去部45に供給され、二酸化炭素は分離されて大気中に放出される。

【0038】

次に、一酸化炭素除去部45も、図1および図2に示すような構造となっている。ただし、この場合、触媒層23は、例えば、Pt、 Al_2O_3 などからなる選択酸化触媒を含むものからなっている。そして、一酸化炭素除去部45は、改質部44からの気化状態の水素および一酸化炭素が流入口25を介して流路22内に供給されると、薄膜ヒータ28の加熱(180°C程度)により、流路22内に供給された水素、一酸化炭素、水のうち、一酸化炭素と水とが反応し、次の式(2)に示すように、水素と副生成物の二酸化炭素とが生成される。

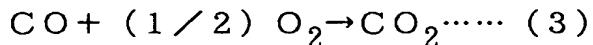


【0039】

上記式(2)の左辺における水(H_2O)は反応の初期では、燃料部42の燃料に含まれているものでよいが、発電部46の発電に伴い生成される水を回収して一酸化炭素除去部45に供給することが可能である。また、一酸化炭素除去部45における反応式(2)の左辺における水の供給源は、発電部46のみでもよく、発電部46および燃料部42でも、また燃料部42のみでもよい。

【0040】

そして、最終的に一酸化炭素除去部45の流出口26に到達する流体はそのほとんどが水素、二酸化炭素となる。なお、一酸化炭素除去部45の流出口26に到達する流体に極微量の一酸化炭素が含まれている場合、残存する一酸化炭素を大気中から逆止弁を介して取り込まれた酸素に接触させることで、次の式(3)に示すように、二酸化炭素が生成され、これにより一酸化炭素が確実に除去される。



【0041】

上記一連の反応後の生成物は水素および二酸化炭素（場合によって微量の水を含む）で構成されるが、これらの生成物のうち、二酸化炭素は水素から分離されて大気中に放出される。したがって、一酸化炭素除去部45から発電部46には水素のみが供給される。なお、一酸化炭素除去部45は、燃料気化部43と改質部44との間に設けてもよい。

【0042】

次に、発電部46は、図12に示すように、周知の固体高分子型の燃料電池からなっている。すなわち、発電部46は、Pt、Cなどの触媒が担持された炭素電極からなるカソード51と、Pt、Ru、Cなどの触媒が担持された炭素電極からなるアノード52と、カソード51とアノード52との間に介在されたフィルム状のイオン導電膜53と、を有して構成され、カソード51とアノード52との間に設けられた2次電池やコンデンサなどからなる充電部47に電力を供給するものである。

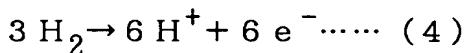
【0043】

この場合、カソード51の外側には空間部54が設けられている。この空間部54内には一酸化炭素除去部45からの水素が供給され、カソード51に水素が供給される。また、アノード52の外側には空間部55が設けられている。この空間部55内には大気中から逆止弁を介して取り込まれた酸素が供給され、アノード52に酸素が供給される。

【0044】

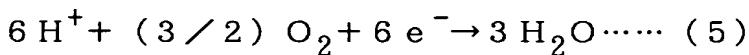
そして、カソード51側では、次の式(4)に示すように、水素から電子(e

e^-) が分離した水素イオン (プロトン; H^+) が発生し、イオン導電膜 5 3 を介してアノード 5 2 側に通過するとともに、カソード 5 1 により電子 (e^-) が取り出されて充電部 4 7 に供給される。



【0045】

一方、アノード 5 2 側では、次の式 (5) に示すように、充電部 4 7 を経由して供給された電子 (e^-) とイオン導電膜 5 3 を通過した水素イオン (H^+) と酸素とが反応して副生成物の水が生成される。



【0046】

以上のような一連の電気化学反応 (式 (4) および式 (5)) は概ね室温~80°C 程度の比較的低温の環境下で進行し、電力以外の副生成物は、基本的に水のみとなる。発電部 4 6 で生成された電力は充電部 4 7 に供給され、これにより充電部 4 7 が充電される。

【0047】

発電部 4 6 で生成された副生成物としての水は回収される。この場合、上述の如く、発電部 4 6 で生成された水の少なくとも一部を改質部 4 4 や一酸化炭素除去部 4 5 に供給するようにすると、燃料部 4 2 内に当初封入される水の量を減らすことができ、また回収される水の量を減らすことができる。

【0048】

ところで、現在、研究開発が行われている燃料改質方式の燃料電池に適用されている燃料としては、少なくとも、水素元素を含む液体燃料または液化燃料または気体燃料であって、発電部 4 6 により、比較的高いエネルギー変換効率で電気エネルギーを生成することができる燃料であればよく、上記のメタノールの他、例えば、エタノール、ブタノールなどのアルコール系の液体燃料や、ジメチルエーテル、イソブタン、天然ガス (CNG) などの液化ガスなどの常温常圧で気化される炭化水素からなる液体燃料、あるいは、水素ガスなどの気体燃料などの液体物質を良好に適用することができる。

【0049】

上記実施形態では、燃料気化部43、改質部44、一酸化炭素除去部45がそれぞれ別体の基板で構成され、互いの流路の末端を連結して構成されていたが、燃料気化部43、改質部44、一酸化炭素除去部45のうち少なくとも2つが同一基板に連続する流路を設けて形成されていてもよい。

【0050】

【発明の効果】

以上説明したように、この発明によれば、フォトトレジストとしてドライフィルムからなるものを用い、フォトトレジストをその表面に形成された不要な部分の触媒層と共に引き剥がして除去しているので、ドライフィルムからなるフォトトレジストを、流路内に残存される触媒層にダメージを与えることなく、良好に除去することができる。また、対向基板との対向面において触媒層に対応する部分に触媒層逃げ用の凹部を形成しているので、フォトトレジストの開口部の内壁面に形成された触媒層がフォトトレジストと共に除去されずに、基板の一面21a上に食み出して残存されても、基板の一面21aに対向基板を確実に接合することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

この発明の一実施形態としての小型化学反応装置の透過平面図。

【図2】

図1のA-A線に沿う断面図。

【図3】

図1および図2に示す小型化学反応装置の第1の例の製造に際し、当初の工程の断面図。

【図4】

図3に続く工程の断面図。

【図5】

図4に続く工程の断面図。

【図6】

図5に続く工程の断面図。

【図7】

図6に示す工程と同じ工程の他の断面図。

【図8】

図7に示す場合における両基板の接合状態の一部を説明するために示す断面図

【図9】

図1および図2に示す小型化学反応装置の第2の例の製造に際し、当初の工程の断面図。

【図10】

図9に続く工程の断面図。

【図11】

この発明に係る小型反応装置を備えた小型発電型電源の一例の要部のブロック図。

【図12】

図9に示す小型発電型電源の発電部の概略構成図。

【図13】

従来の小型化学反応装置の一例の透過平面図。

【図14】

図13のB-B線に沿う断面図。

【図15】

図13および図14に示す小型化学反応装置の製造に際し、当初の工程の断面図。

【図16】

図15に続く工程の断面図。

【図17】

図16に続く工程の断面図。

【符号の説明】

21 基板

22 流路

23 触媒層

24 対向基板

25 流入口

26 流出口

27 凹部

28 薄膜ヒータ

29 基板

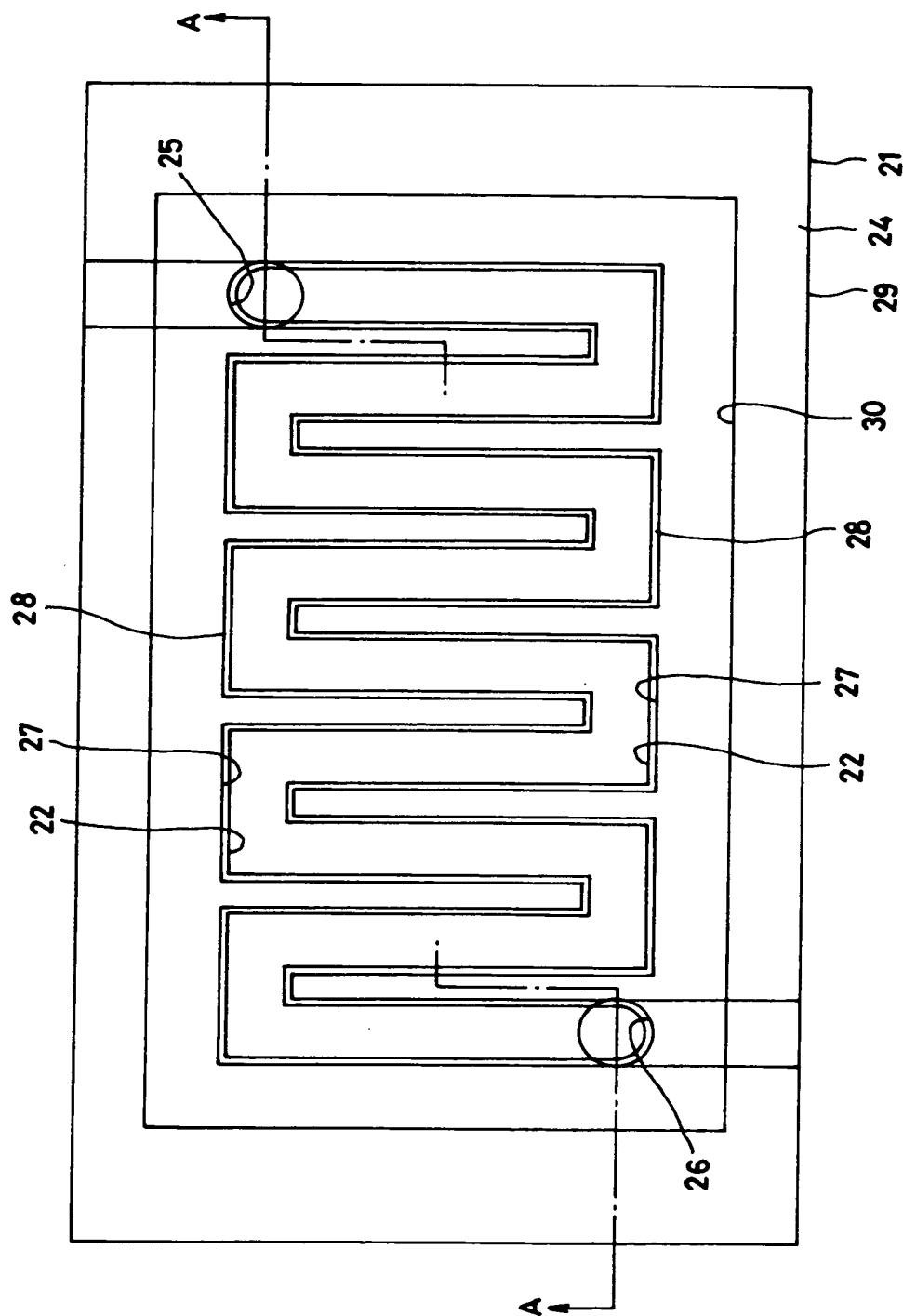
30 凹部

31 フォトレジスト

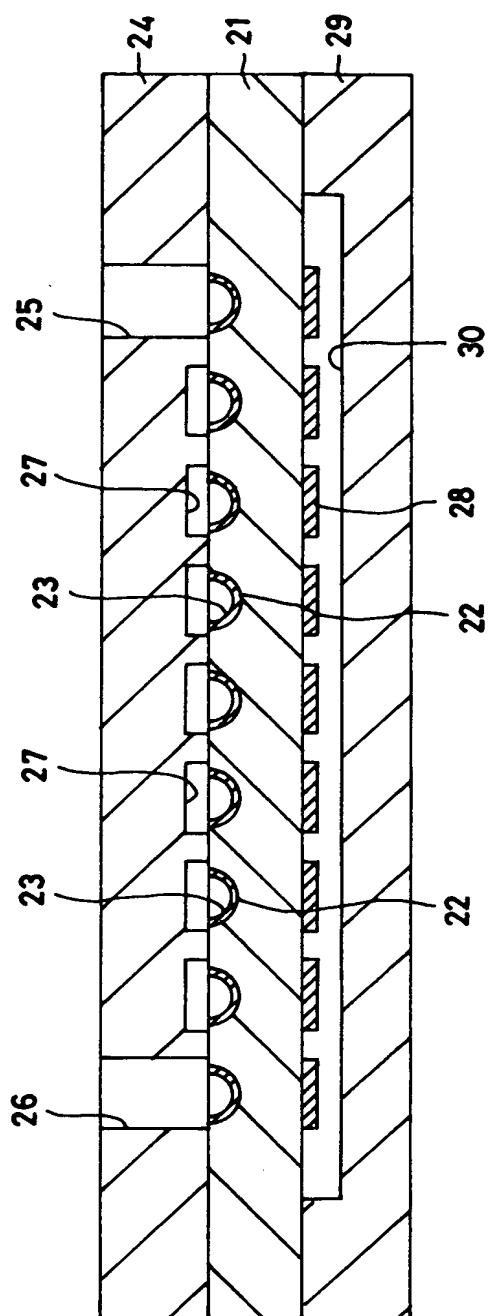
32 開口部

【書類名】 図面

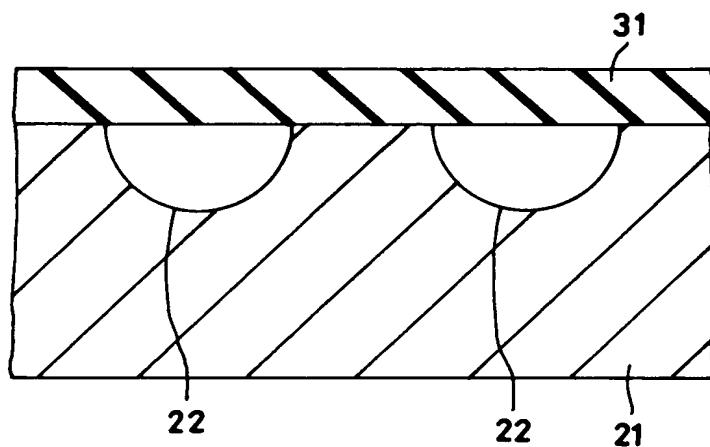
【図1】



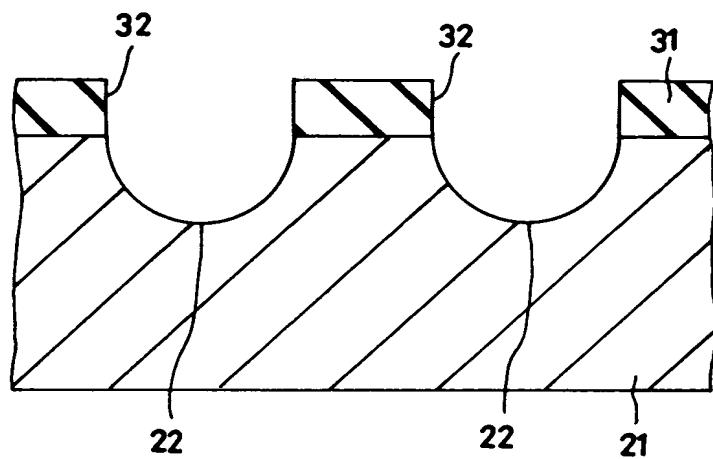
【図2】



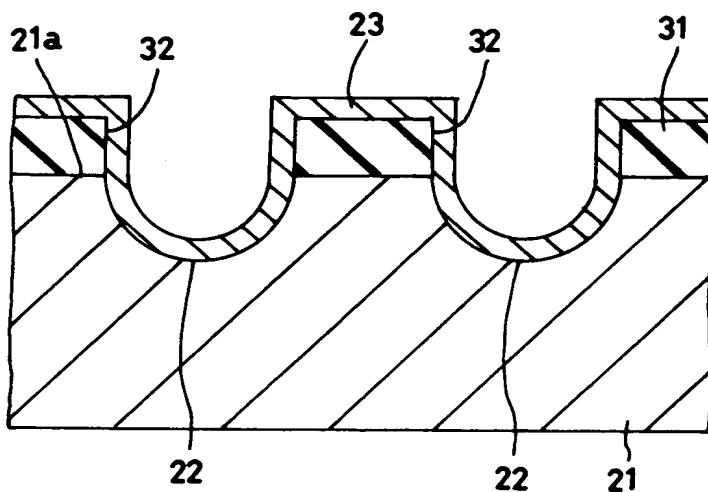
【図3】



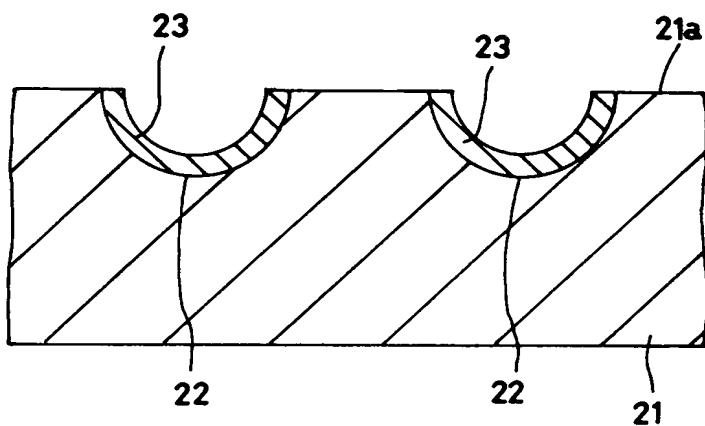
【図4】



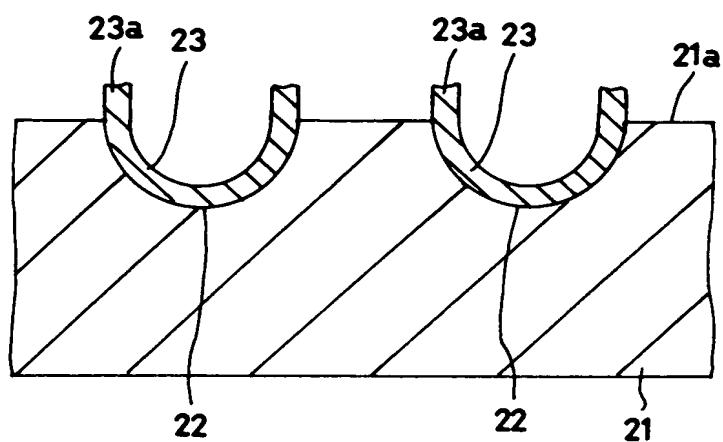
【図5】



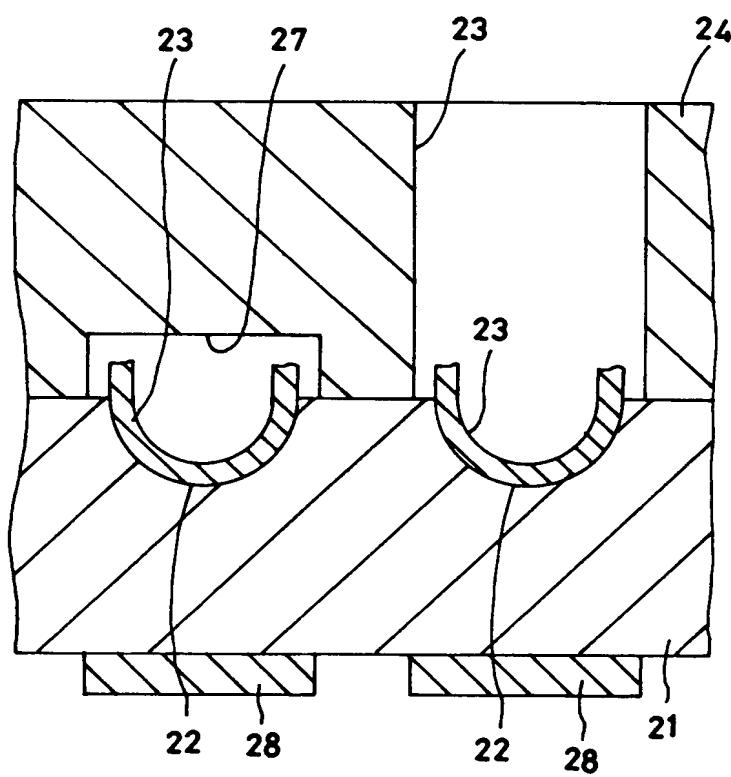
【図6】



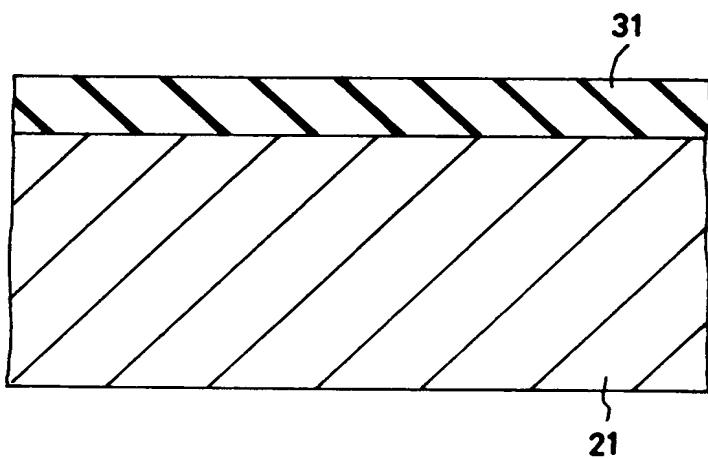
【図7】



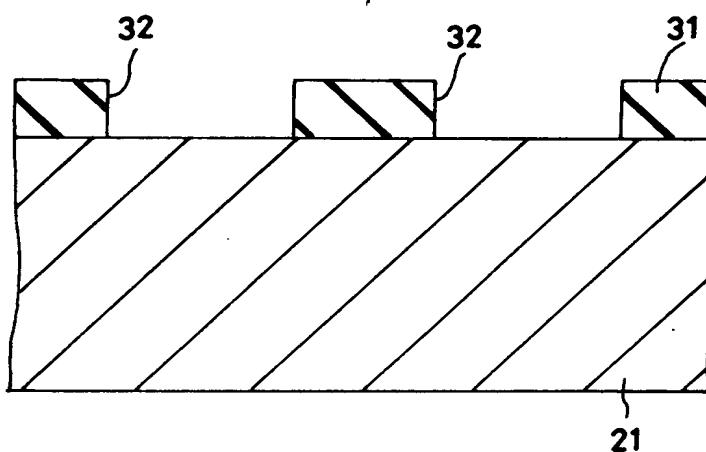
【図8】



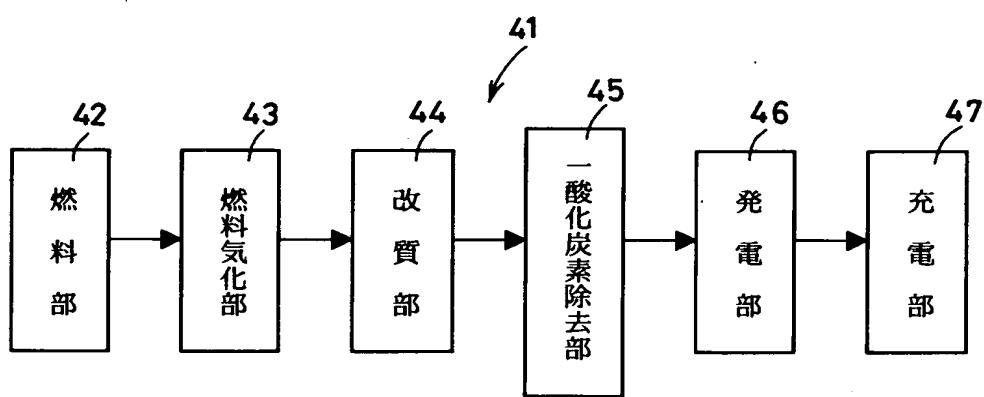
【図9】



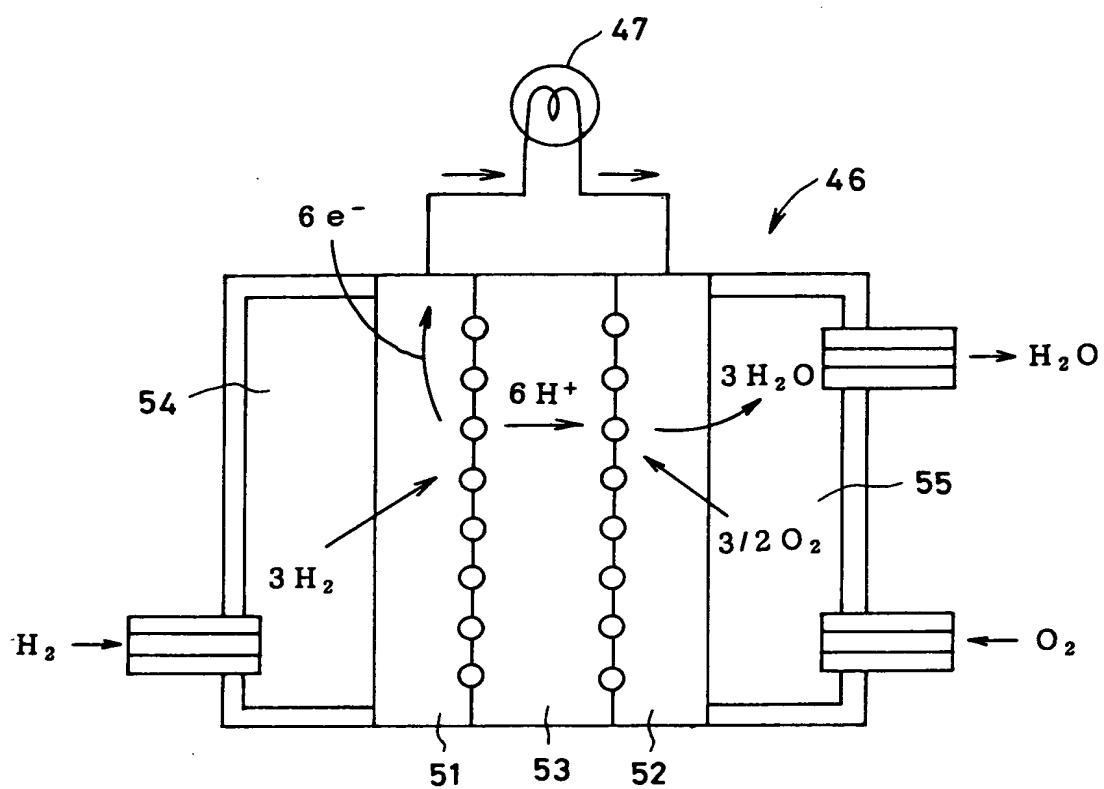
【図10】



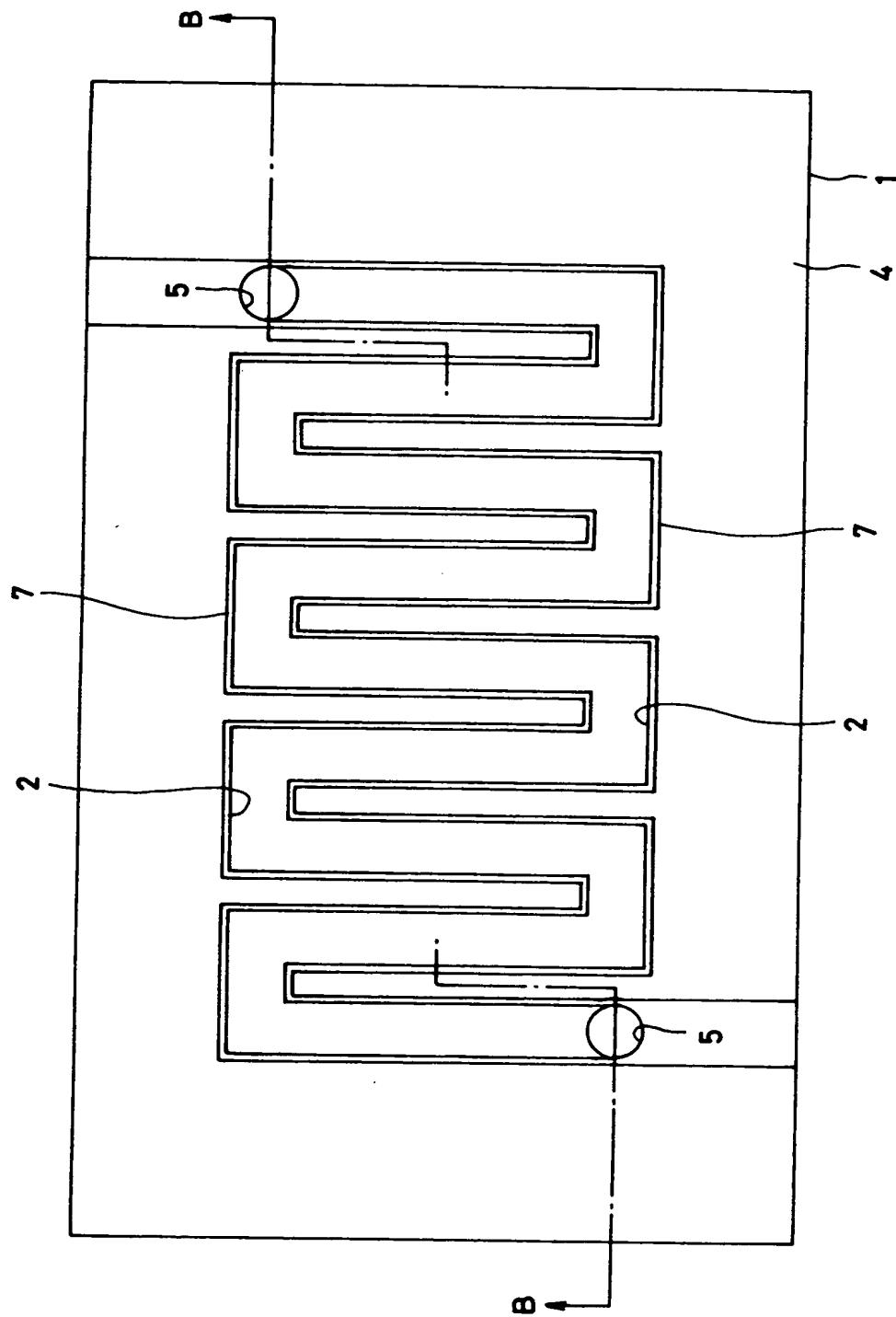
【図11】



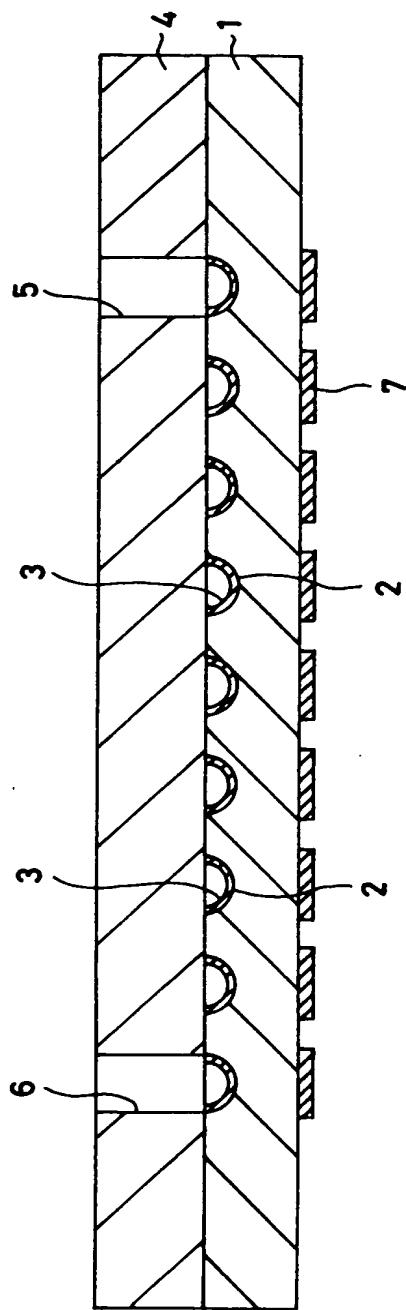
【図12】



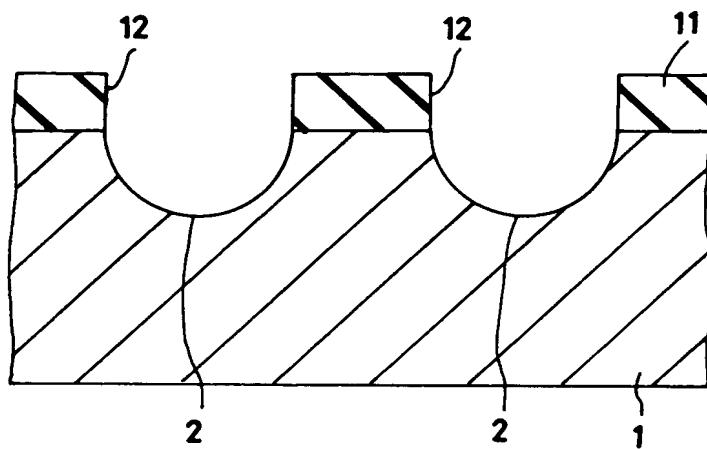
【図13】



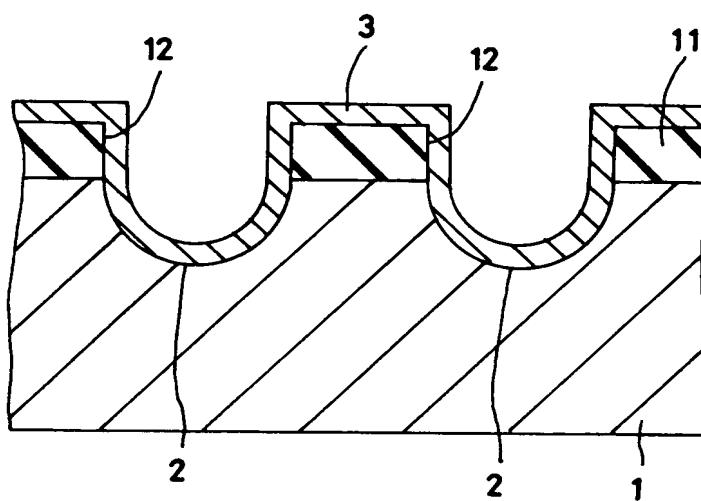
【図14】



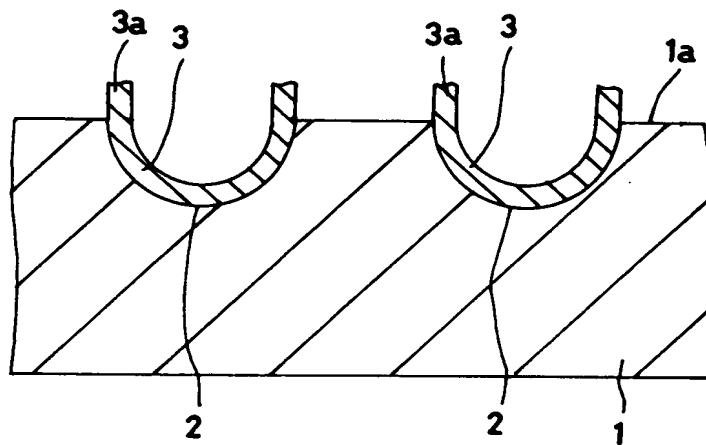
【図15】



【図16】



【図17】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 基板の一面に形成された微小な流路内に触媒層が形成された小型化学反応装置の製造に際し、流路内に触媒層を形成するためのフォトレジストを、流路内に残存される触媒層にダメージを与えることなく、良好に除去する。

【解決手段】 基板21の一面21aに貼り付けられたドライフィルムからなるフォトレジスト31の流路22に対応する部分に開口部32を形成する。次に、流路22内および開口部32内を含むフォトレジスト31の表面に触媒層23を形成する。次に、フォトレジスト31をその表面に形成された不要な部分の触媒層23と共に引き剥がして除去する。これにより、上記課題を達成する。この場合、開口部32の内壁面に形成された触媒層23がフォトレジスト31と共に除去されずに、基板21の一面21a上に食み出して残存されても、基板21の一面21aに陽極接合される基板24に触媒層逃げ用の凹部を形成すると、基板21の一面21aに基板24を確実に陽極接合することができる。

【選択図】 図5

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2002-219205
受付番号	50201111255
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成14年 8月 2日

＜認定情報・付加情報＞

【提出日】 平成14年 7月29日

次頁無

出願人履歴情報

識別番号 [000001443]

1. 変更年月日 1998年 1月 9日

[変更理由] 住所変更

住 所 東京都渋谷区本町1丁目6番2号

氏 名 カシオ計算機株式会社